

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平 8 - 3 2 5 6 4 9

(43) 公開日 平成 8 年 (1996) 12 月 10 日

(51) Int. Cl.

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

C22B 11/00

C22B 11/04

7/00

7/00

B

審査請求 未請求 請求項の数 1 F D (全 3 頁)

(21) 出願番号 特願平 7 - 1 5 5 3 5 8

(22) 出願日 平成 7 年 (1995) 5 月 30 日

(71) 出願人 5 9 3 2 1 3 3 4 2

株式会社日向製錬所

宮崎県日向市船場町 5 番地

(72) 発明者 永井 克彦

宮崎県日向市富高 6 4 0 8 - 5 9

(72) 発明者 黒木 勝幸

宮崎県日向市大字日知屋 5 5 5 2 - 5 0 6

(72) 発明者 宮崎 真也

宮崎県日向市江良町 4 - 1 4 2

(72) 発明者 久保 直樹

宮崎県日向市大字日知屋 1 2 0 0 9 - 1

(74) 代理人 弁理士 押田 良久

(54) 【発明の名称】 白金族含有廃触媒からの白金族金属の濃縮方法

(57) 【要約】

【目的】 銅や鉄などの吸収材を別途添加することなく、粉碎処理が容易な合金中に廃触媒に含有される白金族金属を濃縮する方法を提供することを目的とするものである。

【構成】 アルミナを主体とする担体に白金族金属と鉄族金属とリンとを含有する廃触媒を、溶剤としてのCaOと還元剤としてのコークスとともに加熱融解させ、スラグ相と金属相とを生成せしめ、白金族金属を、鉄族金属とリンとを主成分とし粉碎が容易な鉄系合金中に濃縮するようにした白金族含有廃触媒から白金族金属の濃縮方法である。

【効果】 自動車用廃触媒中に含有されている白金族金属を新たな吸収用の金属を添加することなく、白金族金属の98%以上を粉碎が容易で湿式精製処理に適した鉄系合金中に濃縮することが可能になった。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 アルミナを主体とする担体に白金族金属と鉄族金属とリンとを含有する廃触媒を、溶剤としての CaO と還元剤としてのコークスとともに加熱融解させ、スラグ相と金属相とを生成せしめ、白金族金属を、鉄族金属とリンとを主成分とし粉碎が容易な鉄系合金中に濃縮することを特徴とする白金族含有廃触媒から白金族金属の濃縮方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、自動車の排ガス処理用として使用済みの廃触媒のように、アルミナやコージェライトに代表されるセラミックを主体とする担体に Pt、Pd、Rh の白金族金属を含有する廃触媒から、新たな吸収用の金属を添加せずに、微量に含まれる白金族金属を粉碎容易な金属相中に濃縮し得る白金族含有廃触媒からの白金族金属の濃縮方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 白金族金属を含有する廃触媒からの白金族金属の回収方法としては、廃触媒をそのまま浸出して白金族を回収する方法と、廃触媒を白金族を吸収して合金化が可能な吸収用金属とともに加熱溶解させて合金とした後、浸出あるいは電解によつて白金族金属を濃縮分離して精製する方法とに大別される。

【0003】 最近では、後者の合金化する方法が、白金族金属の回収率がよいこと、および湿式処理設備の規模を小さくできるという利点があることから主流となつている。すなわち、大量処理に適した乾式法で白金族を一次的に濃縮した後、湿式法でさらに濃縮し精製して金属として回収する方法である。前記合金化方法によつて白金族金属を回収するためには、廃触媒中に含まれている白金族金属の含有量が、白金族全体で 1500~2000ppm 程度と少量であるために、吸収材を用いて吸収材中に一次的に濃縮させる必要がある。この吸収材としては、従来、銅や鉄のような金属が用いられている。吸収材として銅を用いる場合には、白金族金属を吸収含有した粗銅をアノードとして通常の銅電解精製法によつて、白金族金属をスライム中に高濃度に濃縮させ、精製工程によつて白金族金属を金属として回収することが可能である。また、吸収材として鉄を用いる場合には、吸収材として、廃触媒中に不純物として混入した鉄材を使用したり、別途鉄族金属を添加する方法が提案されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、銅を吸収材として使用する場合には、吸収材としての銅を別途添加する必要がある上、電解工程に 20~30 日の時間を必要とし、回収期間が長くなるという問題がある。また廃触媒中に不純物として含有されている鉄やニッケルなどの鉄系金属を多量に含有した銅アノードを電解精製することは、電解工程でのトラブルの原因となるために、

あらかじめ鉄系金属を除去することが必要であるのであるが、鉄系金属をあらかじめ完全に除去することは困難であるという問題がある。さらに、鉄族を別途添加する方法は、吸収材中の白金族金属の濃度を低下させることになるので、不純物として鉄族が白金族を吸収するのに十分な量含まれていれば別途添加するのは得策ではない。白金族金属を吸収した鉄系合金から白金族金属を分離回収するためには、湿式法によつて浸出し精製するのであるが、浸出を迅速におこなうためには、微粉末とすることが必要である。しかしながら、従来のこのようにして得られた鉄系合金は、微粉末化が困難であるために、スラグ中に微粒状に分散して凝固した鉄族金属を磁選などによりスラグ成分と分離回収したり、熔融金属の凝固時にショット化やアトマイズ化の処理を施すことによる微粉末化が必要であった。

【0005】 本発明は、銅や鉄などの吸収材を別途添加することなく、粉碎処理が容易な合金中に廃触媒に含有される白金族金属を濃縮する方法を提供することを目的とするものである。

【0006】

【課題を解決するための手段】 本発明者は、前記問題を解決し、前記目的を達成するために研究を重ねた結果、従来その挙動について注目されていなかったリン成分に着目し、白金族金属を吸収した鉄系合金の粉碎性を向上させるための合金成分としてリンを利用することによつて目的を達し得ることを見出して本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は、アルミナを主体とする担体に白金族金属と鉄族金属とリンとを含有する廃触媒を、溶剤としての CaO と還元剤としてのコークスとともに加熱融解させ、スラグ相と金属相とを生成せしめ、白金族金属を、鉄族金属とリンとを主成分とし粉碎が容易な鉄系合金中に濃縮する白金族含有廃触媒から白金族金属の濃縮方法を特徴とする。

【0007】 本発明における溶剤としての CaO の添加量は、廃触媒に対して 60~90 重量%程度の範囲で添加することが好ましく、還元剤としてのコークスの添加量は、廃触媒に対して 2.5 重量%以上添加することが好ましい。廃触媒と CaO、コークスなどの混合物を加熱融解するには電気炉を使用することが好ましい。

【0008】

【作用】 アルミナ、あるいは、コージェライトを主成分とする担体に白金族金属を担持させた自動車排ガス浄化用の使用済み廃触媒に含有されている鉄やニッケルなどの鉄族金属は、排気ガスに由来したり、廃触媒を保持しているケースから廃触媒を分離する際に混入してくるものである。しかし、これらの鉄族金属の含有量は、その触媒が使用された状況や触媒をケースから分離回収する際の混入量が異なるために、ロットによる変動が大きいが、鉄含有量は、ほぼ 0.1~2% の範囲にあり、通常は 0.5~1.5% の範囲である。また、ニッケル含有量も

同様に、ロットによる変動が大きい、その含有量は、ほぼ0.1 ~ 1.5 % の範囲にあり、通常は0.2 ~ 1.0 % の範囲である。さらに、自動車用の廃触媒中には、長時間使用されている間に燃料やエンジンオイルなどに含まれているリンが付着している。廃触媒中のリンの含有量も鉄族金属の含有量と同様にロットによる変動が大きい、その含有量は、ほぼ0.5 ~ 1.0 % の範囲にあり、通常は0.6 ~ 0.7 % の範囲である。

【0009】このように、本発明において利用する廃触媒中の鉄、ニッケル、リンの含有量は、変動が大きい、複数のロットを混合処理することによつて概ね前記の通常の含有量の範囲で操業が可能である。また、鉄、ニッケル、リンなどの成分を別途添加することも可能であるが、これらの成分を別途添加することによつて、白金族金属以外の成分が増加することになり、複数のロットを混合することによつて原料成分を調整する方法に比較して得策ではない方法である。鉄系合金中のリン品位は、10% 近辺、もしくはそれ以上とすることによつて粉碎性を向上させるという目的を達成可能である。廃触媒中のリン成分は、そのほとんどが酸化物として存在しており、鉄系合金中のリン品位の制御は、電気炉に装入するコークス量、またはコークスに代わる還元剤量を調整することによつて可能である。

【0010】コークスの添加量は、前記の範囲が好ましいのであるが、以下の2つの条件から設定される。すなわち、第1に、鉄系合金中のリン品位を制御する点から、通常の場合、コークスの添加量は、廃触媒に体して2% 以上あれば鉄系合金中のリン品位をほぼ10% 以上に制御することが可能である。この鉄系合金中のリン品位に影響を及ぼすスラグ中の酸素分圧は、コークス添加量が2.5% を超えると、10-14 ~ 10-15 気圧とほぼ一定となる測定結果が得られているために、コークスの添加量は、少なくとも2% 以上が必要であり、2.5% を超える添加量で安定したスラグ中の酸素分圧を得ることができる。第2に、白金族金属の回収率の目標は本発明では、98% 以上であつて、この回収率を確保するためには、白金族金属のスラグロスを下下させることが必要であるが、コークスの添加量を2.5% 以上とすることによつて、スラグ中の過酸化物の生成が抑制されて、スラグの粘性が改善され白金族金属のスラグ中への懸垂ロスが防止できる。これらの条件によつて決定されるものである。

【0011】本発明においては、従来の銅を吸収材として使用した場合には、不純物として除去していた鉄、ニッケルなどの鉄族金属を吸収材として使用することを1つの特徴としており、また、従来の鉄族金属を吸収材として使用する場合に比較して特にリンの存在に着目し、

リン量を制御することによつて粉碎性のよい鉄- ニッケル- リン合金中に白金族金属を吸収させ、容易に粉碎が可能な合金とし、粉碎後、迅速に浸出処理を行い白金族金属を回収する方法である。

【0012】

【実施例】次に、本発明の実施例を述べる。

【0013】実施例

Pl 1000g/l、Pd 500g/l、Rh 290g/l とを含有し、コー
ジエライトを主成分とする使用済自動車用廃触媒（使用
中および解体中に混入した鉄 0.9重量%、ニッケル 0.3
重量%、リン 0.7重量%を不純物として含有している）
を、廃触媒に対して、85重量%のCaO と、3重量%のコ
ークスとともに電気炉に装入した。電気炉に装入したこ
れらの原材料を加熱し、約1600℃で融解させ、スラグ相
と、鉄とニッケルとリンとを主成分とする鉄系合金相と
に分離させた後、炉外へ排出し、それぞれについて計
量、分析を行つた。その結果、廃触媒1000kgに対し、白
金族金属を濃縮した鉄系合金15kgと、CaO、Al₂O₃
、MgO、SiO₂ を主成分とするスラグ1800kgを得
た。得られた金属相は、鉄 52%、ニッケル 20%、リ
ン 12%を主成分とし、この金属中に含有されている白
金族金属は、Pl 6.6%、Pd 3.3%、Rh 1.9%であつた。
このようにして、廃触媒中に含有されている白金族金属
の98%以上が鉄系合金中に濃縮し得ることが認められ
た。

【0014】このような本発明方法によつて得られた白
金族金属を含有する鉄系合金から、目的金属である白金
族金属を回収するためには、さらに、湿式法による浸出
処理をはじめとする精製工程を経ることが必要である。
この浸出工程における反応速度は、鉄系合金の粒子の大
きさに大きく影響されるために、得られた金属の粒度を
45ミクロン以下にしておくことが望ましい。したがつ
て、得られた金属は、容易に粉碎可能であることが必要
であるが、本実施例の場合、該金属は、ジョークラッ
シャーによつて、5mm以下まで粗粉碎した後、湿式のボー
ルミルあるいは湿式のロツドミルなどを使用すること
によつて容易に45ミクロン以下まで粉碎することが可能
であつた。

【0015】

【発明の効果】本発明は、白金族金属を吸収した鉄系合
金の粉碎性を向上させるための合金成分としてリンを利
用したものであるから、自動車用廃触媒中に含有されて
いる白金族金属を新たな吸収用の金属を添加することな
く、白金族金属の98%以上を粉碎が容易で湿式精製処理
に適した鉄系合金中に濃縮することが可能になつたもの
であつて顕著な効果が認められる。